

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-062815

(43)Date of publication of application : 12.03.1993

(51)Int.Cl.

H01F 1/08
C22C 28/00
H01F 1/053

(21)Application number : 03-222795 (71)Applicant : HITACHI METALS LTD

(22)Date of filing : 03.09.1991 (72)Inventor : ENDO MINORU
SAKUMA AKIMASA
IWATA MASAO
NAKAMURA KEISUKE

(54) PERMANENT MAGNET AND MANUFACTURING METHOD THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a magnet material having high saturated magnetization, high anisotropic magnetic field and high Curie temperature by adding carbon thereto.

CONSTITUTION: A permanent magnet is composed of a composition of

RaTMbMcADdCe (where, R is at least a kind of rare-earth elements containing Y, TM at least a kind of Fe, Co, and Ni, M at least a kind of Si, Ti, V, Cr, Mo, and W, and AD at least a kind of Al, Zn, Cu, Ga, Ge, Zr, Nb, Sn, Sb, Hf, and Ta, $5 \leq a \leq 18 \text{at\%}$, $65 \leq b \leq 85 \text{at\%}$, $3 \leq c \leq 20 \text{at\%}$, $0 \leq d \leq 8 \text{at\%}$, and $2 \leq e \leq 15 \text{at\%}$). Thus, a magnet material having high magnetic characteristics can be obtained.

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-62815

(43)公開日 平成5年(1993)3月12日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
H 0 1 F 1/08	A	7371-5E		
C 2 2 C 28/00		6919-4K		
H 0 1 F 1/053		7371-5E	H 0 1 F 1/ 04	A

審査請求 未請求 請求項の数6(全 4 頁)

(21)出願番号	特願平3-222795	(71)出願人	000005083 日立金属株式会社 東京都千代田区丸の内2丁目1番2号
(22)出願日	平成3年(1991)9月3日	(72)発明者	遠藤 実 埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式 会社磁性材料研究所内
		(72)発明者	佐久間 昭正 埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式 会社磁性材料研究所内
		(72)発明者	岩田 雅夫 埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式 会社磁性材料研究所内
		(74)代理人	弁理士 大場 充

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 永久磁石およびその製造方法

(57)【要約】

【目的】 高い磁気特性を有する新規な磁石材料を得ること。

【構成】 $R_aTM_bM_cAD_dC_e$ 。(ここで、RはYをふくむ希土類元素のうち少なくとも1種、TMはFe、Co、Niのうち少なくとも1種、MはSi、Ti、V、Cr、Mo、Wのうち少なくとも1種、ADはAl、Zn、Cu、Ga、Ge、Zr、Nb、Sn、Sb、Hf、Taのうち少なくとも1種で、 $5 \leq a \leq 18 \text{ at} \%$ 、 $6 \leq b \leq 85 \text{ at} \%$ 、 $3 \leq c \leq 20 \text{ at} \%$ 、 $0 \leq d \leq 8 \text{ at} \%$ 、 $2 \leq e \leq 15$)の組成から成る永久磁石である。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 $R_2TM_bM_cAD_dC$ 。(ここで、RはYをふくむ希土類元素のうち少なくとも1種、TMはFe, Co, Niのうち少なくとも1種、MはSi, Ti, V, Cr, Mo, Wのうち少なくとも1種、ADはAl, Zn, Cu, Ga, Ge, Zr, Nb, Sn, Sb, Hf, Taのうち少なくとも1種で、 $5 \leq a \leq 18 \text{ at}\%$, $65 \leq b \leq 85 \text{ at}\%$, $3 \leq c \leq 20 \text{ at}\%$, $0 \leq d \leq 8 \text{ at}\%$, $2 \leq e \leq 15$)の組成から成る永久磁石。

【請求項2】 請求項1記載の磁石は正方晶 $ThMn_{12}$ 型結晶構造を有することを特徴とする永久磁石。

【請求項3】 請求項1記載の磁石において、Cは $ThMn_{12}$ 型結晶構造に侵入型として入ることを特徴とする永久磁石。

【請求項4】 請求項1記載の磁石において、希土類元素R中のCeおよび重希土類元素の含有量が1at%以上であることを特徴とする永久磁石。

【請求項5】 請求項1記載の組成となるようR-TM-M-AD-C系溶解合金を作成し、粉碎・成形・焼結による永久磁石の製造方法。

【請求項6】 請求項1記載の組成となるようR-TM-M-AD-C系溶解合金を作成し、溶湯急冷し、適切な熱処理を施し、樹脂をバインダーとして成形する永久磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、VCM(ボイスコイルモータ)、回転機器等に使用される高性能希土類永久磁石に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 $ThMn_{12}$ 型結晶構造を有するR-(Fe, Co)-(Si, Ti, V, Cr, Mo, W)系はすでに永久磁石材料として報告されている。例えば、特開昭62-241302号公報では、主成分が正方晶系結晶構造を有するSm-Fe-Ti系合金の永久磁石材料を報告している。この $SmFe_{11}Ti$ 化合物は飽和磁化12kG、異方性磁界87kOe、キュリー温度310℃の高い磁気特性を有している。また、特開平2-17583号公報では同様な正方晶 $ThMn_{12}$ 型結晶構造を有するSm-Fe-V系材料を報告している。R-Fe-Ti系材料はほとんどの希土類元素の組合わせて $ThMn_{12}$ 型結晶構造を生成するが、一軸異方性を示すのはR=Smの場合だけである。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】上記 $ThMn_{12}$ 型結晶構造を有する $SmFe_{11}Ti$ 系材料は永久磁石として好ましい特性を有しているものの、飽和磁化が $Nd_2Fe_{14}B$ 系より低く、SmがNdより高価であり、焼結法により高特性が得られないといった欠点を有している。このため、安価なR=Ce, Pr, Ndで、 Nd_2Fe_{14}

Bと同等もしくはそれ以上の飽和磁化・異方性磁界・キュリー温度を有する材料が必要とされる。

【0004】

【課題を解決するための手段】 $NdFe_{10-11}(Si, Ti, V, Cr, Mo, W)_{1-2}$ 化合物は $ThMn_{12}$ 型結晶構造を有するが、磁気異方性は面内で、永久磁石には適さない。しかし、本発明はこのNd系 $ThMn_{12}$ 型化合物に炭素(C)を侵入させることにより、高い飽和磁化・異方性磁界・キュリー温度を有する化合物を発見できた。即ち、本発明に関わる永久磁石は $R_2TM_bM_cAD_dC$ 。(ここで、RはYをふくむ希土類元素のうち少なくとも1種、TMはFe, Co, Niのうち少なくとも1種、MはSi, Ti, V, Cr, Mo, Wのうち少なくとも1種、ADはAl, Zn, Cu, Ga, Ge, Zr, Nb, Sn, Sb, Hf, Taのうち少なくとも1種で、 $5 \leq a \leq 18 \text{ at}\%$, $65 \leq b \leq 85 \text{ at}\%$, $3 \leq c \leq 20 \text{ at}\%$, $0 \leq d \leq 8 \text{ at}\%$, $2 \leq e \leq 15$)の組成から成る永久磁石。本発明において希土類元素Rは5at%以上、18at%以下で、好ましくは8at%以上、16at%以下である。RはY, Ce, Pr, Nd, Gd, Tb, Dy, Hoの場合に大きな異方性磁界が得られ、Ce, Pr, Ndの場合に高い飽和磁化が得られる。TMはFe, Co, Niのうち少なくとも1種で、65at%以上、85at%以下である。 $ThMn_{12}$ 型の結晶構造はFeとCoの全組成域で形成されるが、Feが多い方が飽和磁化・異方性磁界が高い。Mは $ThMn_{12}$ 型結晶構造を安定化させるのに必要な元素で、3at%以下ではその効果はなく、20at%以上添加すると飽和磁化が減少し、好ましくない。ADは保磁力を増加するのに必要な元素で、8at%以下が好ましい。これ以上の添加は飽和磁化の低下を来す。Cは飽和磁化・異方性磁界を増加するのに必要な元素で、2at%以下ではその効果は小さく、15at%以上では飽和磁化を低下させ、好ましくない。本発明に関わる磁石は、焼結法および溶湯急冷法により作成される。まず、Fe, Co, Niなどと一緒にC, V, Cr, Mo, Wなどの高融点元素を溶解し、次にR, Ti, Al, Si, Cu, Gaなどの元素と一緒に溶解する。得られたインゴットをディスクミル・ジョークラッシャーなどで粗粉碎し、ジェットミル・ボールミル等で微粉碎した後、磁場中成形し、焼結する。得られた焼結体を500-900℃で熱処理することにより、保磁力の高い磁石が得られる。溶湯急冷法により磁石を作成する場合は、焼結法と同様に溶解合金を作成し、溶湯急冷する。得られたフレーク状試料は必要に応じて、熱処理等を行うことにより磁石特性が得られる。

【0005】

【作用】本発明の作用で重要なポイントは炭素(C)を添加することにある。 R_2Fe_{11} にC, Nを侵入させると、面内異方性であった R_2Fe_{11} 化合物を一軸異方性

に変化させ、高い飽和磁化とキュリー温度が得られる。これはC、NがFeのサブレイヤーに入り、Fe-Fe原子間距離を広げ、R=Smの場合に高い異方性磁界が得られる。R=Smの場合、異方性磁界はNの方がCを侵入させるより高い飽和磁化と異方性磁界が得られる。これと同様に、ThMn₁₂型結晶構造を有するR-Fe-(Si, Ti, V, Cr, Mo, W)系化合物にNを侵入させることにより、高い飽和磁化と異方性磁界が得られることが報告された。本発明者等は、ThMn₁₂型結晶構造においてN、C等の効果を検討した結果、NよりもCを侵入させる方が飽和磁化・異方性磁界・キュリー温度が高くなることを発見した。このことはR₂Fe₁₇化合物とは逆の傾向を示している。R-(Fe, Co)-(Si, Ti, V, Cr, Mo, W)系において、R=Pr, Ndの場合、ThMn₁₂型化合物は安定には生成しにくく、R=Ceおよび重希土類元素の場合*

*に安定に生成される。しかし、高い飽和磁化はR=Pr, Ndの場合に得られる。そこで、ThMn₁₂型結晶構造を安定化し、高い飽和磁化を得るために、R=NdをベースとしてCeもしくは重希土類元素を1at%以上含有させることにより、ThMn₁₂型結晶構造を安定化させ、高い飽和磁化が得られることがわかった。

【0006】

【実施例】実施例 1

表1に示す希土類元素、遷移金属、(Si, Ti, V, Cr, Mo, W)およびAD元素からなる組成の合金をアーク溶解により作製した。得られたインゴットを、溶湯急冷法により超急冷した。得られたフレーク状試料をエポキシ樹脂に浸し、磁場中成形後に固化した。得られた磁気特性を表1に示す。

【表1】

No.	組成	磁気特性		
		Br(kG)	iHc(kOe)	(BH)max(MGOe)
1	Nd _{1.2} Fe ₁₀ Si ₂ C	5.1	5.3	4.1
2	Nd _{1.2} Fe ₁₁ TiC	7.1	7.7	9.3
3	Nd _{1.2} Fe ₁₀ V ₂ C	6.2	5.4	5.7
4	Nd _{1.2} Fe ₁₀ Cr ₂ C	5.0	3.3	3.0
5	Nd _{1.2} Fe ₁₀ Mo ₂ C	6.4	6.1	6.5
6	Nd _{1.2} Fe _{10.8} W _{1.2} C	7.0	8.9	10.0
7	Nd _{1.0} Dy _{0.2} Fe ₁₁ TiC	6.8	18.8	9.2
8	Nd _{1.0} Dy _{0.2} Fe _{10.8} W _{1.2} C	6.5	20.0	8.5
9	Nd _{1.2} Fe _{10.7} W _{1.2} Al _{0.1} C	6.0	10.5	8.3
10	Nd _{1.2} Fe _{10.7} W _{1.2} Cu _{0.1} C	6.7	13.2	9.6
11	Nd _{1.2} Fe _{10.7} W _{1.2} Mo _{0.1} C	6.7	12.2	9.5
12	Nd _{1.2} Fe _{10.7} W _{1.2} Ga _{0.1} C	6.1	10.7	8.2

実施例 2

表2に示す希土類元素、遷移金属、(Si, Ti, V, Cr, Mo, W)およびAD元素からなる組成の合金をアーク溶解により作製した。得られたインゴットをディスクミルで粗粉碎した後、ジェットミルで微粉碎した。※

※得られた微粉を磁場中成形し、焼結した。試料は650℃×1時間熱処理した。得られた磁気特性を表2に示す。

【表2】

No.	組成	磁気特性		
		Br(kG)	iHc(kOe)	(BH)max(MGOe)
1	Nd _{1.4} Fe ₉ CoSi ₂ C	9.1	6.3	18.1
2	Nd _{1.4} Fe ₁₀ CoTiC	10.2	8.7	19.3
3	Nd _{1.4} Fe ₁₀ V ₂ C	8.2	6.4	16.7
4	Nd _{1.4} Fe ₁₀ Cr ₂ C	7.0	5.3	13.0
5	Nd _{1.4} Fe ₉ CoMo ₂ C	6.4	6.1	10.5
6	Nd _{1.4} Fe _{9.8} CoW _{1.2} C	7.0	8.9	12.0
7	Nd _{1.2} Dy _{0.2} Fe ₁₁ TiC	9.8	12.8	18.2
8	Nd _{1.2} Dy _{0.2} Fe _{10.8} W _{1.2} C	9.1	12.0	18.5
9	Nd _{1.2} Dy _{0.2} Fe _{10.7} W _{1.2} Zr _{0.1} C	8.0	10.5	15.3
10	Nd _{1.2} Dy _{0.2} Fe _{10.7} W _{1.2} Nb _{0.1} C	8.7	13.2	16.6
11	Nd _{1.2} Dy _{0.2} Fe _{10.7} W _{1.2} Hf _{0.1} C	7.7	12.2	15.0
12	Nd _{1.4} Fe _{10.7} W _{1.2} Ge _{0.1} C	6.1	10.7	10.2
13	Nd _{1.4} Fe _{9.7} CoW _{1.2} Sn _{0.1} C	7.2	12.2	14.0
14	Nd _{1.4} Fe _{9.7} CoW _{1.2} Sb _{0.1} C	7.0	9.2	12.5
15	Nd _{1.4} Fe _{9.7} CoW _{1.2} Hf _{0.1} C	7.5	8.3	13.4

@

【0007】

【発明の効果】以上のように、ThMn₁₂型結晶構造を有するR-(Fe, Co, Ni)-(Si, Ti, V,

Cr, Mo, W) 系にCを侵入させることにより高い磁* * 気特性を有する磁石材料が得られた。

フロントページの続き

(72)発明者 中村 啓介
埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式
会社磁性材料研究所内